


**SEPARATOR MEMBER FOR SOLID POLYMER TYPE FUEL CELL,
AND MANUFACTURE THEREOF**

Patent Number: JP11297337
Publication date: 1999-10-29
Inventor(s): ENOMOTO MITSUO
Applicant(s):: TOKAI CARBON CO LTD
Requested Patent:  JP11297337

Application Number: JP19980095717 19980408

Priority Number(s):

IPC Classification: H01M8/02 ; H01M8/10

EC Classification:

Equivalents:



Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a member suitable for a separator for a solid polymer type fuel cell having gas impermeability, corrosion resistance, electric conductivity, strength characteristic and the like with good balance, and to provide a manufacturing method therefor.

SOLUTION: This separator for a solid polymer type fuel cell comprises a structure having a metal thin plate of which both obverse and reverse faces are covered with a carbonaceous powder-dispersed cured resin molding of a thermosetting resin, in which a gas flowing for supplying fuel gas or oxidant gas is formed. In a manufacturing method thereof, 10-100 pts.wt. of the thermosetting resin are added to 100 pts.wt. of the carbonaceous powder to be kneaded uniformly, the cured resin molding prepared by curing thereof is thermally pressure-contacted to both of the obverse and reverse faces of the metal thin plate to be attached, and the gas flowing channel for supplying the fuel gas or the oxidant gas is formed in the attached cured resin molding. Graphite powder having 125 μ m or less of the maximum particle size is preferably used for the carbonaceous powder.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-297337

(43)公開日 平成11年(1999)10月29日

(51)Int.Cl.⁸

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02
8/10

H 0 1 M 8/02
8/10

B

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 4 頁)

(21)出願番号 特願平10-95717

(22)出願日 平成10年(1998)4月8日

(71)出願人 000219576

東海カーボン株式会社

東京都港区北青山1丁目2番3号

(72)発明者 榎本 三男

東京都港区北青山一丁目2番3号 東海カーボン株式会社内

(74)代理人 弁理士 福田 保夫 (外1名)

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池セパレータ部材及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】 ガス不透過性、耐蝕性、導電性、更に強度特性等をバランスよく備えた固体高分子型燃料電池のセパレータとして好適な部材、及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 金属薄板と、その表裏両面に炭素質粉末が分散した熱硬化性樹脂の硬化樹脂成形体が被着し、該硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝が形成された構造からなる固体高分子型燃料電池セパレータ部材。その製造方法は、炭素質粉末 100重量に対し、熱硬化性樹脂を10～100重量部の割合で加えて均一に混練し、硬化して得られた硬化樹脂成形体を金属薄板の表裏両面に熱圧接合して被着し、被着された硬化樹脂成形体に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝を形成する。炭素質粉末には最大粒子径が125μm以下の黒鉛粉末が好ましく用いられる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属薄板と、その表裏両面に炭素質粉末が分散した熱硬化性樹脂の硬化樹脂成形体が被着し、該硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝が形成された構造からなることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ部材。

【請求項2】 炭素質粉末100重量部に対し、熱硬化性樹脂を10～100重量部の割合で加えて均一に混練し、硬化して得られた硬化樹脂成形体を金属薄板の表裏両面に熱圧接合して被着し、被着された硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝を形成することを特徴とする請求項1記載の固体高分子型燃料電池セパレータ部材の製造方法。

【請求項3】 炭素質粉末が最大粒子径125 μm 以下の黒鉛粉末である請求項2記載の固体高分子型燃料電池セパレータ部材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子型（SPE型）燃料電池のセパレータ部材及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】固体高分子型燃料電池はパーフルオロカーボンスルホン酸等のイオン交換膜からなる固体高分子の電解質膜と、その両側に設けた2つの電極とそれぞれの電極に水素等の燃料ガスあるいは酸素等の酸化剤ガスを供給するガス供給溝を設けた集電体およびセパレータから構成されている。

【0003】このセパレータには、燃料ガスと酸化剤ガスを完全に分離した状態で電極に供給するために高度のガス不透過性が要求され、また電池反応に伴う発熱を効率よく放散させるために高い熱伝導性、更に、燃料ガスとして用いる水素ガスによる脆化を生じない耐蝕性等が必要である。

【0004】このような材質特性が要求されるセパレータとして、例えば特開平4-267062号公報にはセパレータの材質を純銅やステンレス鋼などで構成する例が開示されている。しかしながら、これらの金属系の材質では燃料ガスとして用いる水素ガスと長時間に亘って接触するために、水素脆性が生じて材質劣化が起こり電池性能が低下する欠点がある。

【0005】また、リン酸型燃料電池ではセパレータに炭素質系の材料、特にガス不透過性に優れているガラス状カーボン材が使用されている。ガラス状カーボン材はフェノール系樹脂やフラン系樹脂などの熱硬化性樹脂液を成形し加熱硬化後、非酸化性雰囲気中800℃以上の温度で焼成炭化して得られるガラス質の性状を呈する特異な炭素材である。

【0006】しかしながら、ガラス状カーボン材は緻密な組織構造を有し、高いガス不透過性を示す反面、硬度

が高く脆性であるので加工性が悪いという欠点がある。更に金属系の材質に比べて熱伝導率が低く電気抵抗も大きいという難点があり、リン酸型燃料電池に比較して高電流密度で運転される固体高分子型燃料電池のセパレータとして使用するには適当でない。

【0007】そこで本出願人はガス不透過性、熱伝導性、導電性、耐蝕性等に優れ、これらの性能をバランスよく備え、固体高分子型燃料電池のセパレータ等として好適な黒鉛部材の製法として、最大粒径125 μm 以下の炭素質粉末に結合材を加えて加熱混練後CIP成形し、次いで焼成、黒鉛化して得られた平均気孔径10 μm 以下、気孔率20%以下の等方性黒鉛材に熱硬化性樹脂液を含浸、硬化処理する固体高分子型燃料電池用黒鉛部材の製造方法（特開平8-222241号公報）を提案した。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明者は、上記特開平8-222241号公報の技術を基に更に研究を進めた結果、金属系材料のもつ優れた導電性及びガス不透過性と、炭素質材料の有する高耐蝕性とをバランスよく併せ持ち、固体高分子型燃料電池のセパレータとして好適な部材及びその製造方法を開発した。

【0009】すなわち、本発明の目的は長期間に亘って安定に稼働することのできる固体高分子型燃料電池セパレータ部材及びその製造方法を提供することにある。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するための本発明による固体高分子型燃料電池セパレータ部材は、金属薄板と、その表裏両面に炭素質粉末が分散した熱硬化性樹脂の硬化樹脂成形体が被着し、該硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝が形成された構造からなることを構成上の特徴とする。

【0011】また、その製造方法は、炭素質粉末100重量部に対し、熱硬化性樹脂を10～100重量部の割合で加えて均一に混練し、硬化して得られた硬化樹脂成形体を金属薄板の表裏両面に熱圧接合して被着し、被着された硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝を形成することを構成上の特徴とする。

【0012】

【発明の実施の形態】本発明のセパレータ部材は厚さ方向の中央部に金属薄板があり、その表裏両面に硬化樹脂成形体が被着された構造からなり、この金属薄板によりガスの透過が遮断される。すなわち、金属板は薄くてもガス不透過性を充分に確保することができるのでセパレータ部材を薄くすることができ、電池スタックの積層厚さを低減することができる。金属薄板の厚さは0.05～1mm程度のものが用いられる。金属としては、鉄、ステンレス、ニッケル、銅、アルミニウム、チタン等多く

の金属を用いることができるが、加工性が容易で安価な金属を選定することが好ましい。

【0013】この金属薄板の表裏両面には、金属表面を被覆するように炭素質粉末が分散した熱硬化性樹脂の硬化樹脂成形体が被着されている。この硬化樹脂成形体はガス不透過性を有するとともに化学的安定性が高く、セパレータ部材の中央部にある金属薄板の腐食抑止に機能する。すなわち、硬化樹脂成形体は均一に分散している炭素質粉末により導電性が確保されるとともに、高ガス不透過性及び高耐蝕性を備えており、金属薄板の腐食防止に機能する。なお、この硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給する流通路としてガス流通溝が形成されており、ガス流通溝は金属薄板の表裏両面に被着された硬化樹脂成形体に互いに直交する方向に設けられている。

【0014】このように本発明の固体高分子型燃料電池セパレータ部材は、セパレータの厚さ方向の中央部にある金属薄板が燃料ガスや酸化剤ガスの透過を防止するとともに内部電気抵抗を低く抑え、またその表裏両面に被着した炭素質粉末が均一に分散した熱硬化性樹脂を硬化した硬化樹脂成形体により高耐蝕性と適度の導電性が付与される。したがって、金属系材料のもつ優れた導電性及びガス不透過性と、炭素・樹脂系材料の有する高耐蝕性と高ガス不透過性とがバランスよく機能して、固体高分子型燃料電池のセパレータ部材として優れた性能を発揮することができる。更に、耐衝撃性にも優れているので電池セルの組立や締め付け時、あるいは隣接するセルとのガス圧力差が生じた際の変形に対する靱性も向上し、長期運転における信頼性も高くなる。

【0015】この固体高分子型燃料電池セパレータ部材は炭素質粉末100重量部に対し、熱硬化性樹脂を10～100重量部の割合で加えて均一に混練し、硬化して得られた硬化樹脂成形体を金属薄板の表裏両面に熱圧接合して被着し、被着された硬化樹脂成形体に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝を形成することにより製造することができる。

【0016】炭素質粉末と熱硬化性樹脂との混合比は、樹脂成分が多くなるとガス不透過性は向上するが電気抵抗の増大を招き、また炭素質粉末の割合が大きくなると導電性は高くなるがガス不透過性が低下する。そのため、混合比は炭素質粉末100重量部に対して熱硬化性樹脂を10～100重量部の範囲に設定する。

【0017】炭素質粉末としては黒鉛粉末、コークス粉末等が用いられるが、導電性や高耐蝕性を付与するために黒鉛粉末が好ましい。また、炭素質粉末の粒子径はガス流通溝を形成する際の溝加工時における粒子脱落を防止するために最大粒子径として125 μm 以下のものが好ましく用いられる。

【0018】熱硬化性樹脂は固体高分子型燃料電池の発電稼働時の温度である80～120℃の耐熱性、pH2

～3のスルホン酸や硫酸酸性に耐え得る耐酸性があれば、特に制限はなく、例えばフェノール樹脂、フラン樹脂、エポキシ樹脂等が用いられる。

【0019】これらの炭素質粉末と熱硬化性樹脂とを所定の重量比で混合し、均一に混練したのち、金属薄板の形状に合わせて板状に成形し、半硬化（一次硬化）処理して板状成形体を得られる。半硬化状態の板状成形体は鉄、ステンレス、ニッケル、銅、アルミニウム、チタン等の金属の厚さ0.05～1mmの薄板の表裏両面に熱圧接合により強固に被着されるとともに二次硬化される。熱圧接合は、例えば温度80～200℃、圧力10～1000Kg/cm²の条件で適宜時間処理することにより行われ、その結果硬化樹脂成形体は金属面に強固に接合、被着する。この場合、金属薄板の両面は適度に粗面化しておくで硬化樹脂成形体をより強固に被着させることができる。

【0020】なお、この金属薄板の表裏両面に被着した硬化樹脂成形体に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給する流通路となるガス流通溝を互いに直交する方向に形成することにより、本発明の固体高分子型燃料電池セパレータ部材が製造される。

【0021】

【実施例】以下、本発明の実施例を比較例と対比して説明する。

【0022】実施例1～2

炭素質粉末として120メッシュ篩下（最大粒子径125 μm ）の黒鉛粉末を用い、黒鉛粉末100重量部に対しフェノール樹脂初期縮合物を20重量部、及び35重量部の割合で加えて十分に混練し均一な混練物を調製した。この混練物を半硬化（一次硬化）して板状に成形し、金属薄板として縦横200mm、厚さ0.2mmのステンレス板を用い、その表裏両面に板状成形体を180℃、250Kg/cm²の条件で熱圧接合して被着した。このようにして、ステンレス薄板の両面に、フェノール樹脂中に黒鉛粉末が均一に分散した硬化樹脂成形体が被着した縦横200mm、厚さ1.5mmのセパレータ部材を製造した。

【0023】実施例3

炭素質粉末として最大粒子径125 μm の黒鉛粉末を用い、黒鉛粉末100重量部にフェノール樹脂初期縮合物を70重量部の割合で加え、金属薄板として厚さ0.2mmのニッケル板を用いた他は、実施例1と同一の条件により縦横200mm、厚さ1.5mmのセパレータ部材を得た。

【0024】比較例1

金属薄板を使用しない他は実施例1と同一の方法、すなわち120メッシュ篩下（最大粒子径125 μm ）の黒鉛粉末100重量部にフェノール樹脂初期縮合物を20重量部の割合で加えて混練し、混練物を半硬化（一次硬化）して板状に成形し、次いで180℃、250Kg/cm²

の条件で熱圧処理して縦横200mm、厚さ1.5mmの黒鉛粉末が分散した硬化フェノール樹脂の板状成形体を作製した。

【0025】比較例2

フェノール樹脂初期縮合物の配合割合を、黒鉛粉末100重量部に対し120重量部とした他は実施例1と同一の方法によりセパレータ部材を作製した。

【0026】これらの各セパレータ部材の特性を下記の方法により測定し、その結果を表1に示した。

①固有抵抗 ($\Omega \cdot \text{cm}$) : JIS R7202「人造黒鉛電極の試験方法」の電圧降下法による。

②曲げ強度 (Kg/cm^2) : JIS K7203「硬質プラスチックの曲げ強度試験方法」による。

③腐食電流 ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$) : 温度80℃、濃度0.02%ベンゼンスルホン酸水溶液中における0.8 V/RHEの定電位腐食試験における500分後の腐食電流を測定。

④ガス透過率 ($\text{cc}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$) : 窒素ガス $1\text{Kg}/\text{cm}^2$ の圧力(差圧)で、単位断面積当たり、単位時間当たりの通過窒素ガス体積を測定。なお、ガス透過率はセパレータ部材の両面に深さ0.5mmの溝を切った試料について測定。

【0027】

【表1】

例No.	金属薄板 (厚さ) (mm)	黒鉛粉/ 樹脂(重 量部)	固有抵抗 ($\times 10^{-3}$ $\Omega \cdot \text{cm}$)	曲げ強度 (Kg/cm^2)	腐食電流 ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	ガス透過 率 (cc/cm^2 $\cdot \text{sec}$)
実施例1	SUS(0.2)	100/20	5.4	520	0.38	10^{-6} 以下
実施例2	SUS(0.2)	100/35	9.0	580	0.34	10^{-6} 以下
実施例3	Ni(0.2)	100/70	23	670	0.25	10^{-6} 以下
比較例1	———	100/20	8.7	380	0.39	5×10^{-4}
比較例2	SUS(0.2)	100/120	92	750	0.21	10^{-6} 以下

【0028】表1の結果から、実施例の部材は比較例の部材に比べて固有抵抗、曲げ強度、腐食電流、ガス透過率ともバランスよく備えていることが判る。また、比較例1は金属薄板を使用していないために曲げ強度が低く、ガス不透過性にも劣る結果となっている。比較例2では金属薄板を用いているが熱硬化性樹脂の配合量が高いために固有抵抗の増大が大きく、固体高分子型燃料電池用のセパレータ部材として性能低下が認められる。

【0029】

【発明の効果】以上のとおり本発明の固体高分子型燃料電池セパレータ部材によれば、金属薄板と、その表裏両面に炭素質粉末が分散した熱硬化性樹脂の硬化樹脂成形

体が被着し、硬化樹脂成形体には燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流通溝が形成された構造からなるので、金属薄板による優れたガス不透過性と導電性、またその表裏両面に被着した硬化樹脂成形体による優れた耐蝕性及びガス不透過性の機能が付与され、更に強度特性もバランスよく付与される。したがって、長期間に亘って安定に発電を行うことが可能となる。また、本発明の製造方法によれば、炭素質粉末と熱硬化性樹脂との混合割合を特定した硬化樹脂成形体を被着することにより金属薄板の両面に強固に被着し、本発明の優れた性能を有する固体高分子型燃料電池セパレータ部材を製造することができる。